BUNDERREPUBLIK DEUTSCHLAND 2003 20 JUN 2003



# Prioritätsbescheinigung über die Einreichung einer Patentanmeldung

Aktenzeichen:

÷

102 29 595.6

Anmeldetag:

2. Juli 2002

Anmelder/Inhaber:

Bayer CropScience AG, Monheim/DE

(Vormals: Bayer Aktiengesellschaft,

Leverkusen/DE)

Bezeichnung:

Phenylbenzamide

IPC:

C 07 C und A 01 N

Die angehefteten Stücke sind eine richtige und genaue Wiedergabe der ursprünglichen Unterlagen dieser Patentanmeldung.

München, den 16. Mai 2003

**Deutsches Patent- und Markenamt** 

Der Präsident

Im Auftrag

PRIORITY DOCUMENT

SUBMITTED OR TRANSMITTED IN COMPLIANCE WITH RULE 17.1(a) OR (b)

Wallner

Rest Available Copy



#### **Phenylbenzamide**

Die vorliegende Erfindung betrifft neue Phenylbenzamide, ein Verfahren zu deren Herstellung und deren Verwendung zur Bekämpfung von unerwünschten Mikroorganismen.

Es ist bereits bekannt, dass zahlreiche Phenylbenzamide fungizide Eigenschaften besitzen (vgl. z.B. EP-A 0 545 099). So sind z.B. bereits die Phenylbenzamide N-(2-Hexylphenyl)-2-(trifluormethyl)benzamid und N-(2-Hexylphenyl)-2-iodbenzamid aus EP-A 0 545 099 bekannt, wobei Daten für deren biologische Wirksamkeit in der genannten Patentanmeldung nicht enthalten sind.

Es wurden nun neue Phenylbenzamide der Formel (I)

$$R^1$$
  $O$   $N$   $H_3C$   $R^2$   $CH_3$   $(I)$ 

'

15

gefunden, in welcher

- R<sup>1</sup> für Trifluormethyl, Chlor, Brom oder Iod steht und
- R<sup>2</sup> für Wasserstoff oder Methyl steht.
- Weiterhin wurde gefunden, dass man die Phenylbenzamide der Formel (I) erhält, indem man
  - a) in einem ersten Schritt Anilin mit einem Alken der Formel (II)

$$H_2C$$
 $R^2$ 
 $CH_3$ 
(II)

in welcher

R<sup>2</sup> für Wasserstoff oder Methyl steht,

in Gegenwart einer Base und in Gegenwart einer Lewis-Säure umsetzt und das so erhaltene Alkylphenylamin-Derivat der Formel (III)

$$H_2N$$
 $H_3C$ 
 $R^2$ 
 $CH_3$ 
 $CH_3$ 

in welcher

R<sup>2</sup> für Wasserstoff oder Methyl steht.

10

b) in einem zweiten Schritt mit einem Benzoylchlorid der Formel (IV)

in welcher

R<sup>1</sup> für Trifluormethyl, Chlor, Brom oder Iod steht,

gegebenenfalls in Gegenwart eines Säurebindemittels und gegebenenfalls in Gegenwart eines Verdünnungsmittels umsetzt.

20

Schließlich wurde gefunden, dass die neuen Phenylbenzamide der Formel (I) sehr gute mikrobizide Eigenschaften besitzen und zur Bekämpfung unerwünschter Mikroorganismen sowohl im Pflanzenschutz als auch im Materialschutz verwendbar sind.

Überraschenderweise zeigen die erfindungsgemäßen Phenylbenzamide der Formel (I) eine wesentlich bessere fungizide Wirksamkeit als die konstitutionell ähnlichsten, vorbekannten Wirkstoffe gleicher Wirkungsrichtung.

Die erfindungsgemäßen Phenylbenzamide sind durch die Formel (I) allgemein definiert.

<u>Bevorzugt</u> sind Phenylbenzamide der Formel (I) sind, in welcher R<sup>2</sup> für Wasserstoff steht.

10

Bevorzugt sind Phenylbenzamide der Formel (I) sind, in welcher R<sup>2</sup> für Methyl steht.

<u>Bevorzugt</u> sind Phenylbenzamide der Formel (I) sind, in welcher R<sup>1</sup> für Trifluormethyl oder Iod steht.

**15** .

Erfindungsgemäß werden von der Formel (I) folgende Phenylbenzamide umfasst:

N-[2-(1,3-Dimethylbutyl)phenyl]-2-(trifluormethyl)benzamid,

N-[2-(1,3-Dimethylbutyl)phenyl]-2-chlorbenzamid,

20

N-[2-(1,3-Dimethylbutyl)phenyl]-2-brombenzamid,

N-[2-(1,3-Dimethylbutyl)phenyl]-2-iodbenzamid,

2-(Trifluormethyl)-N-[2-(1,3,3-trimethylbutyl)phenyl]benzamid,

2-Chlor-N-[2-(1,3,3-trimethylbutyl)phenyl]benzamid,

2-Brom-N-[2-(1,3,3-trimethylbutyl)phenyl]benzamid,

25 2-Iod-*N*-[2-(1,3,3-trimethylbutyl)phenyl]benzamid.

Verwendet man Anilin, 4-Methyl-1-penten und 2-(Trifluormethyl)benzoylchlorid als Ausgangsstoffe, so kann der Verlauf des erfindungsgemäßen Verfahrens durch das folgende Formelschema veranschaulicht werden.

10

15

20

a) 
$$H_2N$$
  $+$   $H_3C$   $CH_3$   $H_3C$   $CH_3$   $CF_3$   $O$   $CF_3$   $O$   $CF_3$   $O$   $O$ 

b) 
$$CI + H_2N + H_3C + CH_3$$
  $CF_3 O + H_3C + CH_3$ 

Die bei der Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens im ersten Schritt als Ausgangsstoffe benötigten Komponenten Anilin sowie die Alkene der Formel (II), nämlich 4-Methyl-1-penten und 4,4-Dimethyl-1-penten, sind allgemein bekannte Synthesechemikalien und kommerziell erhältlich.

Die bei der Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens im <u>zweiten Schritt</u> als Ausgangsstoffe benötigten Benzoylchloride der Formel (IV), nämlich 2-(Trifluormethyl)benzoylchlorid, 2-Chlorbenzoylchlorid, 2-Brombenzoylchlorid und 2-Iodbenzoylchlorid, sind allgemein bekannte Synthesechemikalien und kommerziell erhältlich.

Die im <u>ersten Schritt</u> (a) des erfindungsgemäßen Verfahrens erhaltenen Alkylphenylamin-Derivate der Formel (III) sind neu und ebenfalls Gegenstand der vorliegenden Erfindung.

Die erfindungsgemäßen Alkylphenylamin-Derivate der Formel (III) sind das 2-(1,3-Dimethylbutyl)phenylamin und das 2-(1,3,3-Trimethylbutyl)phenylamin.

Als Base kommen bei der Durchführung des <u>ersten Schrittes</u> (a) des erfindungsgemäßen Verfahrens alle für derartige Reaktionen üblichen anorganischen und organischen Basen in Betracht. Bevorzugt verwendet man Aluminiumgranulat (vgl. DE-OS 27 30 620).

Als Lewis-Säure kommen bei der Durchführung des <u>ersten Schrittes</u> (a) des erfindungsgemäßen Verfahrens alle für derartige Reaktionen üblichen Verbindungen in Betracht. Bevorzugt verwendet man Aluminiumchlorid oder Eisenchlorid, besonders bevorzugt Aluminiumchlorid (vgl. DE-OS 27 30 620).

10

15

Als Säurebindemittel kommen bei der Durchführung des zweiten Schrittes (b) des erfindungsgemäßen Verfahren alle für derartige Reaktionen üblichen anorganischen und organischen Basen in Betracht. Vorzugsweise verwendbar sind Erdalkali- oder Alkalimetallhydroxide, wie Natriumhydroxid, Calciumhydroxid, Kaliumhydroxid, oder auch Ammoniumhydroxid, Alkalimetallcarbonate, wie Natriumcarbonat, Kaliumcarbonat, Kaliumcarbonat, Kaliumcarbonat, Natriumhydrogencarbonat, Alkali- oder Erdalkalimetallacetate wie Natriumacetat, Kaliumacetat, Calciumacetat, sowie tertiäre Amine, wie Trimethylamin, Triethylamin, Tributylamin, N,N-Dimethylanilin, Pyridin, N-Methylpiperidin, N,N-Dimethylaminopyridin, Diazabicyclooctan (DABCO), Diazabicyclononen (DBN) oder Diazabicycloundecen (DBU). Besonders bevorzugt verwendet man Kaliumcarbonat.

20

25

30

Als Verdünnungsmittel kommen bei der Durchführung des zweiten Schrittes (b) des erfindungsgemäßen Verfahren alle üblichen inerten, organischen Solventien infrage. Vorzugsweise verwendbar sind gegebenenfalls halogenierte aliphatische, alicyclische oder aromatische Kohlenwasserstoffe, wie Petrolether, Hexan, Heptan, Cyclohexan, Methylcyclohexan, Benzol, Toluol, Xylol oder Decalin; Chlorbenzol, Dichlorbenzol, Dichlormethan, Chloroform, Tetrachlormethan, Dichlorethan oder Trichlorethan; Ether, wie Diethylether, Diisopropylether, Methyl-t-butylether, Methyl-t-amylether, Dioxan, Tetrahydrofuran, 1,2-Dimethoxyethan, 1,2-Diethoxyethan oder Anisol; Nitrile, wie Acetonitril, Propionitril, n- oder i-Butyronitril oder Benzonitril; Amide, wie N,N-Dimethylformamid, N,N-Dimethylacetamid, N-Methylformanilid, N-Methylpyrrolidon oder Hexamethylphosphorsäuretriamid; Ester wie Essigsäuremethylester oder Essigsäureethylester, Sulfoxide, wie Dimethylsulfoxid oder Sulfone, wie Sulfolan. Besonders bevorzugt verwendet man Acetonitril.

15

20

25

30

Die Reaktionstemperaturen können bei der Durchführung des <u>ersten Schrittes</u> (a) des erfindungsgemäßen Verfahrens jeweils in einem größeren Bereich variiert werden. Im allgemeinen arbeitet man bei Temperaturen zwischen 100°C und 300°C, bevorzugt zwischen 150°C und 280°C, besonders bevorzugt zwischen 200°C und 260°C.

Bei der Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahren arbeitet man im allgemeinen jeweils unter erhöhtem Druck von 1 bar bis 250 bar. Bevorzugt wird unter erhöhtem Druck von 50 bar bis 150 bar gearbeitet.

Die Reaktionstemperaturen können bei der Durchführung des <u>zweiten Schrittes</u> (b) des erfindungsgemäßen Verfahrens in einem größeren Bereich variiert werden. Im allgemeinen arbeitet man bei Temperaturen zwischen -20°C und 180°C, vorzugsweise zwischen 10°C und 50°C.

Bei der Durchführung des <u>zweiten Schrittes</u> (b) des erfindungsgemäßen Verfahrens arbeitet man im allgemeinen jeweils unter Atmosphärendruck. Es ist aber auch möglich, jeweils unter erhöhtem oder vermindertem Druck zu arbeiten.

Bei der Durchführung des ersten Schrittes (a) des erfindungsgemäßen Verfahrens setzt man auf 1 Mol an Anilin im allgemeinen 1 bis 10 Mol, bevorzugt 1.5 bis 5 Mol, besonders bevorzugt 2 bis 2.5 Mol an 4-Methyl-1-penten ein. Es ist jedoch auch möglich, die Reaktionskomponenten in anderen Verhältnissen einzusetzen. Die Aufarbeitung erfolgt nach üblichen Methoden. Im allgemeinen verfährt man in der Weise, dass man das Reaktionsgemisch mit Toluol, mit wässriger Base verrührt, die organische Phase abtrennt und nach dem Trocknen unter vermindertem Druck einengt. Der verbleibende Rückstand kann gegebenenfalls nach üblichen Methoden, wie Chromatographie, Destillation oder Umkristallisation, von eventuell noch vorhandenen Verunreinigungen befreit werden.

Bei der Durchführung des <u>zweiten Schrittes</u> (b) des erfindungsgemäßen Verfahrens setzt man auf 1 Mol an Benzoylchlorid der Formel (III) im allgemeinen 1 Mol oder auch einen Überschuss an 2-(1,3-Dimethylbutyl)phenylamin der Formel (II) ein. Es

ist jedoch auch möglich, die Reaktionskomponenten in anderen Verhältnissen einzusetzen. Die Aufarbeitung erfolgt nach üblichen Methoden. Im allgemeinen verfährt man in der Weise, dass man das Reaktionsgemisch mit Wasser versetzt und extrahiert, die organische Phase abtrennt, trocknet und unter vermindertem Druck einengt. Der verbleibende Rückstand kann gegebenenfalls nach üblichen Methoden, wie Chromatographie oder Umkristallisation, von eventuell noch vorhandenen Verunreinigungen befreit werden.

Die erfindungsgemäßen Stoffe weisen eine starke mikrobizide Wirkung auf und können zur Bekämpfung von unerwünschten Mikroorganismen, wie Fungi und Bakterien, im Pflanzenschutz und im Materialschutz eingesetzt werden.

Fungizide lassen sich Pflanzenschutz zur Bekämpfung von Plasmodiophoromycetes, Oomycetes, Chytridiomycetes, Zygomycetes, Ascomycetes, Basidiomycetes und Deuteromycetes einsetzen.

Bakterizide lassen sich im Pflanzenschutz zur Bekämpfung von Pseudomonadaceae, Rhizobiaceae, Enterobacteriaceae, Corynebacteriaceae und Streptomycetaceae einsetzen.

20

Beispielhaft aber nicht begrenzend seien einige Erreger von pilzlichen und bakteriellen Erkrankungen, die unter die oben aufgezählten Oberbegriffe fallen, genannt:

Xanthomonas-Arten, wie beispielsweise Xanthomonas campestris pv. oryzae;

Pseudomonas-Arten, wie beispielsweise Pseudomonas syringae pv. lachrymans;

Erwinia-Arten, wie beispielsweise Erwinia amylovora;

Pythium-Arten, wie beispielsweise Pythium ultimum;

Phytophthora-Arten, wie beispielsweise Phytophthora infestans;

Pseudoperonospora-Arten, wie beispielsweise Pseudoperonospora humuli oder

30 Pseudoperonospora cubensis;

Plasmopara-Arten, wie beispielsweise Plasmopara viticola;

Bremia-Arten, wie beispielsweise Bremia lactucae;

30

Peronospora-Arten, wie beispielsweise Peronospora pisi oder P. brassicae;

Erysiphe-Arten, wie beispielsweise Erysiphe graminis;

Sphaerotheca-Arten, wie beispielsweise Sphaerotheca fuliginea;

Podosphaera-Arten, wie beispielsweise Podosphaera leucotricha;

Venturia-Arten, wie beispielsweise Venturia inaequalis;

Pyrenophora-Arten, wie beispielsweise Pyrenophora teres oder P. graminea

(Konidienform: Drechslera, Syn: Helminthosporium);

Cochliobolus-Arten, wie beispielsweise Cochliobolus sativus

(Konidienform: Drechslera, Syn: Helminthosporium);

Uromyces-Arten, wie beispielsweise Uromyces appendiculatus;

Puccinia-Arten, wie beispielsweise Puccinia recondita;

Sclerotinia-Arten, wie beispielsweise Sclerotinia sclerotiorum;

Tilletia-Arten, wie beispielsweise Tilletia caries;

Ustilago-Arten, wie beispielsweise Ustilago nuda oder Ustilago avenae;

Pellicularia-Arten, wie beispielsweise Pellicularia sasakii;

Pyricularia-Arten, wie beispielsweise Pyricularia oryzae;

Fusarium-Arten, wie beispielsweise Fusarium culmorum;

Botrytis-Arten, wie beispielsweise Botrytis cinerea;

Septoria-Arten, wie beispielsweise Septoria nodorum;

20 Leptosphaeria-Arten, wie beispielsweise Leptosphaeria nodorum;

Cercospora-Arten, wie beispielsweise Cercospora canescens;

Alternaria-Arten, wie beispielsweise Alternaria brassicae;

Pseudocercosporella-Arten, wie beispielsweise Pseudocercosporella herpotrichoides.

Die erfindungsgemäßen Wirkstoffe weisen auch eine starke stärkende Wirkung in Pflanzen auf. Sie eignen sich daher zur Mobilisierung pflanzeneigener Abwehrkräfte gegen Befall durch unerwünschte Mikroorganismen.

Unter pflanzenstärkenden (resistenzinduzierenden) Stoffen sind im vorliegenden Zusammenhang solche Substanzen zu verstehen, die in der Lage sind, das Abwehrsystem von Pflanzen so zu stimulieren, dass die behandelten Pflanzen bei nachfol-

gender Inokulation mit unerwünschten Mikroorganismen weitgehende Resistenz gegen diese Mikroorganismen entfalten.

Unter unerwünschten Mikroorganismen sind im vorliegenden Fall phytopathogene Pilze, Bakterien und Viren zu verstehen. Die erfindungsgemäßen Stoffe können also eingesetzt werden, um Pflanzen innerhalb eines gewissen Zeitraumes nach der Behandlung gegen den Befall durch die genannten Schaderreger zu schützen. Der Zeitraum, innerhalb dessen Schutz herbeigeführt wird, erstreckt sich im allgemeinen von 1 bis 10 Tage, vorzugsweise 1 bis 7 Tage nach der Behandlung der Pflanzen mit den Wirkstoffen.

Die gute Pflanzenverträglichkeit der Wirkstoffe in den zur Bekämpfung von Pflanzenkrankheiten notwendigen Konzentrationen erlaubt eine Behandlung von oberirdischen Pflanzenteilen, von Pflanz- und Saatgut, und des Bodens.

Die erfindungsgemäßen Wirkstoffe eignen sich auch zur Steigerung des Ernteertrages. Sie sind außerdem mindertoxisch und weisen eine gute Pflanzenverträglichkeit auf.

Die erfindungsgemäßen Wirkstoffe können gegebenenfalls in bestimmten Konzentrationen und Aufwandmengen auch als Herbizide, zur Beeinflussung des Pflanzenwachstums, sowie zur Bekämpfung von tierischen Schädlingen verwendet werden. Sie lassen sich gegebenenfalls auch als Zwischen- und Vorprodukte für die Synthese weiterer Wirkstoffe einsetzen.

Erfindungsgemäß können alle Pflanzen und Pflanzenteile behandelt werden. Unter Pflanzen werden hierbei alle Pflanzen und Pflanzenpopulationen verstanden, wie erwünschte und unerwünschte Wildpflanzen oder Kulturpflanzen (einschließlich natürlich vorkommender Kulturpflanzen). Kulturpflanzen können Pflanzen sein, die durch konventionelle Züchtungs- und Optimierungsmethoden oder durch biotechnologische und gentechnologische Methoden oder Kombinationen dieser Methoden erhalten werden können, einschließlich der transgenen Pflanzen und einschließlich

10

15

20

30

**-**5

10

15

20

25

30

der durch Sortenschutzrechte schützbaren oder nicht schützbaren Pflanzensorten. Unter Pflanzenteilen sollen alle oberirdischen und unterirdischen Teile und Organe der Pflanzen, wie Spross, Blatt, Blüte und Wurzel verstanden werden, wobei beispielhaft Blätter, Nadeln, Stängel, Stämme, Blüten, Fruchtkörper, Früchte und Samen sowie Wurzeln, Knollen und Rhizome aufgeführt werden. Zu den Pflanzenteilen gehört auch Erntegut sowie vegetatives und generatives Vermehrungsmaterial, beispielsweise Stecklinge, Knollen, Rhizome, Ableger und Samen.

Die erfindungsgemäße Behandlung der Pflanzen und Pflanzenteile mit den Wirkstoffen erfolgt direkt oder durch Einwirkung auf deren Umgebung, Lebensraum oder Lagerraum nach den üblichen Behandlungsmethoden, z.B. durch Tauchen, Sprühen, Verdampfen, Vernebeln, Streuen, Aufstreichen und bei Vermehrungsmaterial, insbesondere bei Samen, weiterhin durch ein- oder mehrschichtiges Umhüllen.

Im Materialschutz lassen sich die erfindungsgemäßen Stoffe zum Schutz von technischen Materialien gegen Befall und Zerstörung durch unerwünschte Mikroorganismen einsetzen.

Unter technischen Materialien sind im vorliegenden Zusammenhang nichtlebende Materialien zu verstehen, die für die Verwendung in der Technik zubereitet worden sind. Beispielsweise können technische Materialien, die durch erfindungsgemäße Wirkstoffe vor mikrobieller Veränderung oder Zerstörung geschützt werden sollen, Klebstoffe, Leime, Papier und Karton, Textilien, Leder, Holz, Anstrichmittel und Kunststoffartikel, Kühlschmierstoffe und andere Materialien sein, die von Mikroorganismen befallen oder zersetzt werden können. Im Rahmen der zu schützenden Materialien seien auch Teile von Produktionsanlagen, beispielsweise Kühlwasserkreisläufe, genannt, die durch Vermehrung von Mikroorganismen beeinträchtigt werden können. Im Rahmen der vorliegenden Erfindung seien als technische Materialien vorzugsweise Klebstoffe, Leime, Papiere und Kartone, Leder, Holz, Anstrichmittel, Kühlschmiermittel und Wärmeübertragungsflüssigkeiten genannt, besonders bevorzugt Holz.

25

30

Als Mikroorganismen, die einen Abbau oder eine Veränderung der technischen Materialien bewirken können, seien beispielsweise Bakterien, Pilze, Hefen, Algen und Schleimorganismen genannt. Vorzugsweise wirken die erfindungsgemäßen Wirkstoffe gegen Pilze, insbesondere Schimmelpilze, holzverfärbende und holzzerstörende Pilze (Basidiomyceten) sowie gegen Schleimorganismen und Algen.

Es seien beispielsweise Mikroorganismen der folgenden Gattungen genannt:

Alternaria, wie Alternaria tenuis,

Aspergillus, wie Aspergillus niger,

Chaetomium, wie Chaetomium globosum,

Coniophora, wie Coniophora puetana,

Lentinus, wie Lentinus tigrinus,

Penicillium, wie Penicillium glaucum,

Polyporus, wie Polyporus versicolor,

15 Aureobasidium, wie Aureobasidium pullulans,

Sclerophoma, wie Sclerophoma pityophila,

Trichoderma, wie Trichoderma viride,

Escherichia, wie Escherichia coli,

Pseudomonas, wie Pseudomonas aeruginosa,

20 Staphylococcus, wie Staphylococcus aureus.

Die Wirkstoffe können in Abhängigkeit von ihren jeweiligen physikalischen und/ oder chemischen Eigenschaften in die üblichen Formulierungen überführt werden, wie Lösungen, Emulsionen, Suspensionen, Pulver, Schäume, Pasten, Granulate, Aerosole, Feinstverkapselungen in polymeren Stoffen und in Hüllmassen für Saatgut, sowie ULV-Kalt- und Warmnebel-Formulierungen.

Diese Formulierungen werden in bekannter Weise hergestellt, z.B. durch Vermischen der Wirkstoffe mit Streckmitteln, also flüssigen Lösungsmitteln, unter Druck stehenden verflüssigten Gasen und/oder festen Trägerstoffen, gegebenenfalls unter Verwendung von oberflächenaktiven Mitteln, also Emulgiermitteln und/oder Dispergiermitteln und/oder schaumerzeugenden Mitteln. Im Falle der Benutzung von Wasser als

Streckmittel können z.B. auch organische Lösungsmittel als Hilfslösungsmittel verwendet werden. Als flüssige Lösungsmittel kommen im Wesentlichen infrage: Aromaten, wie Xylol, Toluol oder Alkylnaphthaline, chlorierte Aromaten oder chlorierte aliphatische Kohlenwasserstoffe, wie Chlorbenzole, Chlorethylene oder Methylenchlorid, aliphatische Kohlenwasserstoffe, wie Cyclohexan oder Paraffine, z.B. Erdölfraktionen, Alkohole, wie Butanol oder Glycol sowie deren Ether und Ester, Ketone, wie Aceton, Methylethylketon, Methylisobutylketon oder Cyclohexanon, stark polare Lösungsmittel, wie Dimethylformamid und Dimethylsulfoxid, sowie Wasser. Mit verflüssigten gasförmigen Streckmitteln oder Trägerstoffen sind solche Flüssigkeiten gemeint, welche bei normaler Temperatur und unter Normaldruck gasförmig sind, z.B. Aerosol-Treibgase, wie Halogenkohlenwasserstoffe sowie Butan, Propan, Stickstoff und Kohlendioxid. Als feste Trägerstoffe kommen infrage: z.B. natürliche Gesteinsmehle, wie Kaoline, Tonerden, Talkum, Kreide, Quarz, Attapulgit, Montmorillonit oder Diatomeenerde und synthetische Gesteinsmehle, wie hochdisperse Kieselsäure, Aluminiumoxid und Silikate. Als feste Trägerstoffe für Granulate kommen infrage: z.B. gebrochene und fraktionierte natürliche Gesteine wie Calcit, Bims, Marmor, Sepiolith, Dolomit sowie synthetische Granulate aus anorganischen und organischen Mehlen sowie Granulate aus organischem Material wie Sägemehl, Kokosnussschalen, Maiskolben und Tabakstängel. Als Emulgier und/oder schaumerzeugende Mittel kommen infrage: z.B. nichtionogene und anionische Emulgatoren, wie Polyoxyethylen-Fettsäureester, Polyoxyethylen-Fettalkoholether, z.B. Alkylarylpolyglycolether, Alkylsulfonate, Alkylsulfate, Arylsulfonate sowie Eiweißhydrolysate. Als Dispergiermittel kommen infrage: z.B. Lignin-Sulfitablaugen und Methylcellulose.

Es können in den Formulierungen Haftmittel wie Carboxymethylcellulose, natürliche und synthetische pulverige, körnige oder latexförmige Polymere verwendet werden, wie Gummiarabicum, Polyvinylalkohol, Polyvinylacetat, sowie natürliche Phospholipide, wie Kephaline und Lecithine, und synthetische Phospholipide. Weitere Additive können mineralische und vegetabile Öle sein.

Es können Farbstoffe wie anorganische Pigmente, z.B. Eisenoxid, Titanoxid, Ferrocyanblau und organische Farbstoffe, wie Alizarin-, Azo- und Metallphthalocyanin-

10

20

25

15

farbstoffe und Spurennährstoffe, wie Salze von Eisen, Mangan, Bor, Kupfer, Kobalt, Molybdän und Zink verwendet werden.

Die Formulierungen enthalten im allgemeinen zwischen 0,1 und 95 Gewichtsprozent Wirkstoff, vorzugsweise zwischen 0,5 und 90 %.

Die erfindungsgemäßen Wirkstoffe können als solche oder in ihren Formulierungen auch in Mischung mit bekannten Fungiziden, Bakteriziden, Akariziden, Nematiziden oder Insektiziden verwendet werden, um so z.B. das Wirkungsspektrum zu verbreitern oder Resistenzentwicklungen vorzubeugen. In vielen Fällen erhält man dabei synergistische Effekte, d.h. die Wirksamkeit der Mischung ist größer als die Wirksamkeit der Einzelkomponenten.

Als Mischpartner kommen zum Beispiel folgende Verbindungen infrage:

# 15 Fungizide:

20

25

30

2-Phenylphenol; 8-Hydroxychinolinsulfat;

Acibenzolar-S-methyl; Aldimorph; Amidoflumet; Ampropylfos; Ampropylfos-Kalium; Andoprim; Anilazine; Azaconazol; Azoxystrobin;

Benalaxyl; Benodanil; Benomyl; Benthiavalicarb-isopropyl; Benzamacril; Benzamacril-isobutyl; Bilanafos; Binapacryl; Biphenyl; Bitertanol; Blasticidin-S; Bromuconazol; Bupirimate; Buthiobate; Butylamin;

Calcium polysulfide; Capsimycin; Captafol; Captan; Carbendazim; Carboxin; Carpropamid; Carvone; Chinomethionat; Chlobenthiazone; Chlorfenazol; Chloroneb; Chlorothalonil; Chlozolinate; Clozylacon; Cyazofamid; Cyflufenamid; Cymoxanil; Cyproconazol; Cyprodinil; Cyprofuram;

Dagger G; Debacarb; Dichlofluanid; Dichlone; Dichlorophen; Diclocymet; Diclomezine; Dicloran; Diethofencarb; Difenoconazol; Diflumetorim; Dimethirimol; Dimethomorph; Dimoxystrobin; Diniconazol; Diniconazol-M; Dinocap; Diphenylamine; Dipyrithione; Ditalimfos; Dithianon; Dodine; Drazoxolon;

Edifenphos; Epoxiconazol; Ethaboxam; Ethirimol; Etridiazol; Famoxadone; Fenamidone; Fenapanil; Fenarimol; Fenbuconazol; Fenfuram; Fenhexamid; Fenitropan; Fenoxanil; Fenpiclonil; Fenpropidin; Fenpropimorph; Ferbam;

Fluazinam; Flubenzimine; Fludioxonil; Flumetover; Flumorph; Fluoromide; Fluoxastrobin; Fluquinconazol; Flurprimidol; Flusilazol; Flusulfamide; Flutolanil; Flutriafol; Folpet; Fosetyl-Al; Fosetyl-Natium; Fuberidazol; Furalaxyl; Furametpyr; Furcarbanil; Furmecyclox;

Guazatine; Hexachlorobenzene; Hexaconazol; Hymexazol;
Imazalil; Imibenconazol; Iminoctadine triacetate; Iminoctadine tris(albesil; Iodocarb;
Ipconazol; Iprobenfos; Iprodione; Iprovalicarb; Irumamycin; Isoprothiolane;
Isovaledione;

Kasugamycin; Kresoxim-methyl;

Mancozeb; Maneb; Meferimzone; Mepanipyrim; Mepronil; Metalaxyl; Metalaxyl-M; Metconazol; Methasulfocarb; Methfuroxam; Metiram; Metominostrobin; Metsulfovax; Mildiomycin; Myclobutanil; Myclozolin;

Natamycin; Nicobifen; Nitrothal-isopropyl; Noviflumuron; Nuarimol;

Ofurace; Orysastrobin; Oxadixyl; Oxolinic acid; Oxpoconazol; Oxycarboxin;

15 Oxyfenthiin;

20

25

Paclobutrazol; Pefurazoate; Penconazol; Pencycuron; Phosdiphen; Phthalide; Picoxystrobin; Piperalin; Polyoxins; Polyoxorim; Probenazol; Prochloraz; Procymidone; Propamocarb; Propamosin-Natrium; Propiconazol; Propineb; Proquinazid; Prothioconazol; Pyraclostrobin; Pyrazophos; Pyrifenox; Pyrimethanil; Pyroquilon;

Pyroxyfur; Pyrrolnitrine; Quinconazol; Quinoxyfen; Quintozene;

Simeconazol; Spiroxamine; Sulfur;

Tebuconazol; Tecloftalam; Tecnazene; Tetcyclacis; Tetraconazol; Thiabendazol; Thicyofen; Thifluzamide; Thiophanate-methyl; Thiram; Tioxymid; Tolclofos-methyl; Tolylfluanid; Triadimefon; Triadimenol; Triazbutil; Triazoxide; Tricyclamide; Tricyclamide; Tricyclamide; Tricyclamide; Triflumizole; Triforine; Triticonazol;

Uniconazol; Validamycin A; Vinclozolin; Zineb; Ziram; Zoxamide;

(2S)-N-[2-[4-[[3-(4-Chlorphenyl)-2-propinyl]oxy]-3-methoxyphenyl]ethyl]-3-methyl- 2-[(methylsulfonyl)amino]-butanamid;

1-(1-Naphthalenyl)-1H-pyrrol-2,5-dion;

30 2,3,5,6-Tetrachlor-4-(methylsulfonyl)-pyridin;

2-Amino-4-methyl-N-phenyl-5-thiazolcarboxamid;

2-Chlor-N-(2,3-dihydro-1,1,3-trimethyl-1H-inden-4-yl)-3-pyridincarboxamide;

3,4,5-Trichlor-2,6-pyridindicarbonitril; Actinovate;

cis-1-(4-Chlorphenyl)-2-(1H-1,2,4-triazol-1-yl)-cycloheptanol;

Methyl 1-(2,3-dihydro-2,2-dimethyl-1H-inden-1-yl)-1H-imidazol-5-carboxylat;

Monokaliumcarbonat; N-(6-Methoxy-3-pyridinyl)-cyclopropancarboxamid;

5 N-Butyl-8-(1,1-dimethylethyl)-1-oxaspiro[4.5]decan-3-amin;

Natriumtetrathiocarbonat;

sowie Kupfersalze und -zubereitungen, wie Bordeaux mixture; Kupferhydroxid; Kupfernaphthenat; Kupferoxychlorid; Kupfersulfat; Cufraneb; Kupferoxid; Mancopper; Oxine-copper.

10

#### Bakterizide:

Bronopol, Dichlorophen, Nitrapyrin, Nickel-dimethyldithiocarbamat, Kasugamycin, Octhilinon, Furancarbonsäure, Oxytetracyclin, Probenazol, Streptomycin, Tecloftalam, Kupfersulfat und andere Kupfer-Zubereitungen.

15

#### Insektizide / Akarizide / Nematizide:

Abamectin, Acephate, Acetamiprid, Acrinathrin, Alanycarb, Aldicarb, Aldoxycarb, Alpha-cypermethrin, Alphamethrin, Amitraz, Avermectin, AZ 60541, Azadirachtin, Azamethiphos, Azinphos A, Azinphos M, Azocyclotin,

- Bacillus popilliae, Bacillus sphaericus, Bacillus subtilis, Bacillus thuringiensis, Baculoviren, Beauveria bassiana, Beauveria tenella, Bendiocarb, Benfuracarb, Bensultap, Benzoximate, Betacyfluthrin, Bifenazate, Bifenthrin, Bioethanomethrin, Biopermethrin, Bistrifluron, BPMC, Bromophos A, Bufencarb, Buprofezin, Butathiofos, Butocarboxim, Butylpyridaben,
- 25 Cadusafos, Carbaryl, Carbofuran, Carbophenothion, Carbosulfan, Cartap, Chloethocarb, Chlorethoxyfos, Chlorfenapyr, Chlorfenvinphos, Chlorfluazuron, Chlormephos, Chlorpyrifos, Chlorpyrifos M, Chlovaporthrin, Chromafenozide, Cis-Resmethrin, Cispermethrin, Clocythrin, Cloethocarb, Clofentezine, Clothianidine, Cyanophos, Cycloprene, Cycloprothrin, Cyfluthrin, Cyhalothrin, Cyhexatin, Cypermethrin, Cyromazine,
- Deltamethrin, Demeton M, Demeton S, Demeton-S-methyl, Diafenthiuron, Diazinon, Dichlorvos, Dicofol, Diflubenzuron, Dimethoat, Dimethylvinphos, Diofenolan, Disulfoton, Docusat-Natrium, Dofenapyn,

Eflusilanate, Emamectin, Empenthrin, Endosulfan, Entomopfthora spp., Esfenvalerate, Ethiofencarb, Ethion, Ethoprophos, Etofenprox, Etoxazol, Etrimfos,

Fenamiphos, Fenazaquin, Fenbutatin oxide, Fenitrothion, Fenothiocarb, Fenoxacrim, Fenoxycarb, Fenpropathrin, Fenpyrad, Fenpyrithrin, Fenpyroximate, Fenvalerate, Fipronil, Fluazuron, Flubrocythrinate, Flucycloxuron, Flucythrinate, Flufenoxuron, Flumethrin, Flutenzine, Fluvalinate, Fonophos, Fosmethilan, Fosthiazate, Fubfenprox, Furathiocarb, Granuloseviren,

Halofenozide, HCH, Heptenophos, Hexaflumuron, Hexythiazox, Hydroprene, Imidacloprid, Indoxacarb, Isazofos, Isofenphos, Isoxathion, Ivermectin,

- 10 Kernpolyederviren, Lambda-cyhalothrin, Lufenuron,
  Malathion, Mecarbam, Metaldehyd, Methamidophos, Metharhizium anisopliae,
  Metharhizium flavoviride, Methidathion, Methiocarb, Methoprene, Methomyl,
  Methoxyfenozide, Metolcarb, Metoxadiazone, Mevinphos, Milbemectin, Milbemycin, Monocrotophos,
- Naled, Nitenpyram, Nithiazine, Novaluron, Omethoat, Oxamyl, Oxydemethon M,
  Paecilomyces fumosoroseus, Parathion A, Parathion M, Permethrin, Phenthoat,
  Phorat, Phosalone, Phosmet, Phosphamidon, Phoxim, Pirimicarb, Pirimiphos A,
  Pirimiphos M, Profenofos, Promecarb, Propargite, Propoxur, Prothiofos, Prothoat,
  Pymetrozine, Pyraclofos, Pyresmethrin, Pyrethrum, Pyridaben, Pyridathion, Pyrimidifen, Pyriproxyfen,

Quinalphos, Ribavirin,

25

Salithion, Sebufos, Silafluofen, Spinosad, Spirodiclofen, Sulfotep, Sulprofos, Tau-fluvalinate, Tebufenozide, Tebufenpyrad, Tebupirimiphos, Teflubenzuron, Tefluthrin, Temephos, Temivinphos, Terbufos, Tetrachlorvinphos, Tetradifon Theta-cypermethrin, Thiacloprid, Thiamethoxam, Thiapronil, Thiatriphos, Thiocyclam hydrogen oxalate, Thiodicarb, Thiofanox, Thuringiensin, Tralocythrin, Tralomethrin, Triarathene, Triazamate, Triazophos, Triazuron, Trichlophenidine, Trichlorfon, Triflumuron, Trimethacarb,

Vamidothion, Vaniliprole, Verticillium lecanii,

30 YI 5302, Zeta-cypermethrin, Zolaprofos
(1R-cis)-[5-(Phenylmethyl)-3-furanyl]-methyl-3-[(dihydro-2-oxo-3(2H)-furanyliden)methyl]-2,2-dimethylcyclopropancarboxylat

20

(3-Phenoxyphenyl)-methyl-2,2,3,3-tetramethylcyclopropanecarboxylat
1-[(2-Chlor-5-thiazolyl)methyl]tetrahydro-3,5-dimethyl-N-nitro-1,3,5-triazin-2(1H)imin
2-(2-Chlor-6-fluorphenyl)-4-[4-(1,1-dimethylethyl)phenyl]-4,5-dihydro-oxazol
2-(Acetlyoxy)-3-dodecyl-1,4-naphthalindion

2-Chlor-N-[[[4-(1-phenylethoxy)-phenyl]-amino]-carbonyl]-benzamid
2-Chlor-N-[[[4-(2,2-dichlor-1,1-difluorethoxy)-phenyl]-amino]-carbonyl]-benzamid
3-Methylphenyl-propylcarbamat
4-[4-(4-Ethoxyphenyl)-4-methylpentyl]-1-fluor-2-phenoxy-benzol

4-Chlor-2-(1,1-dimethylethyl)-5-[[2-(2,6-dimethyl-4-phenoxyphenoxy)ethyl]thio]-3(2H)-pyridazinon

4-Chlor-2-(2-chlor-2-methylpropyl)-5-[(6-iod-3-pyridinyl)methoxy]-3(2H)-pyridazinon 4-Chlor-5-[(6-chlor-3-pyridinyl)methoxy]-2-(3,4-dichlorphenyl)-3(2H)-pyridazinon Bacillus thuringiensis strain EG-2348

Benzoesäure [2-benzoyl-1-(1,1-dimethylethyl)-hydrazid

Butansäure 2,2-dimethyl-3-(2,4-dichlorphenyl)-2-oxo-1-oxaspiro[4.5]dec-3-en-4-yl-ester

[3-[(6-Chlor-3-pyridinyl)methyl]-2-thiazolidinyliden]-cyanamid Dihydro-2-(nitromethylen)-2H-1,3-thiazine-3(4H)-carboxaldehyd

Ethyl-[2-[[1,6-dihydro-6-oxo-1-(phenylmethyl)-4-pyridazinyl]oxy]ethyl]-carbamat N-(3,4,4-Trifluor-1-oxo-3-butenyl)-glycin N-(4-Chlorphenyl)-3-[4-(difluormethoxy)phenyl]-4,5-dihydro-4-phenyl-1H-pyrazol-1-carboxamid

N-[(2-Chlor-5-thiazolyl)methyl]-N'-methyl-N"-nitro-guanidin

N-Methyl-N'-(1-methyl-2-propenyl)-1,2-hydrazindicarbothioamid
N-Methyl-N'-2-propenyl-1,2-hydrazindicarbothioamid
O,O-Diethyl-[2-(dipropylamino)-2-oxoethyl]-ethylphosphoramidothioat
N-Cyanomethyl-4-trifluormethyl-nicotinamid
3,5-Dichlor-1-(3,3-dichlor-2-propenyloxy)-4-[3-(5-trifluormethylpyridin-2-yloxy)-propoxy]-benzol

. 5

10

15

20

25

30

Auch eine Mischung mit anderen bekannten Wirkstoffen, wie Herbiziden oder mit Düngemitteln und Wachstumsregulatoren ist möglich.

Darüber hinaus weisen die erfindungsgemäßen Verbindungen der Formel (I) auch sehr gute antimykotische Wirkungen auf. Sie besitzen ein sehr breites antimykotisches Wirkungsspektrum, insbesondere gegen Dermatophyten und Sprosspilze, Schimmel und diphasische Pilze (z.B. gegen Candida-Spezies wie Candida albicans, Candida glabrata) sowie Epidermophyton floccosum, Aspergillus-Spezies wie Aspergillus niger und Aspergillus fumigatus, Trichophyton-Spezies wie Trichophyton mentagrophytes, Microsporon-Spezies wie Microsporon canis und audouinii. Die Aufzählung dieser Pilze stellt keinesfalls eine Beschränkung des erfassbaren mykotischen Spektrums dar, sondern hat nur erläuternden Charakter.

Die Wirkstoffe können als solche, in Form ihrer Formulierungen oder den daraus bereiteten Anwendungsformen, wie gebrauchsfertige Lösungen, Suspensionen, Spritzpulver, Pasten, lösliche Pulver, Stäubemittel und Granulate angewendet werden. Die Anwendung geschieht in üblicher Weise, z.B. durch Gießen, Verspritzen, Versprühen, Verstreuen, Verstäuben, Verschäumen, Bestreichen usw. Es ist ferner möglich, die Wirkstoffe nach dem Ultra-Low-Volume-Verfahren auszubringen oder die Wirkstoffzubereitung oder den Wirkstoff selbst in den Boden zu injizieren. Es kann auch das Saatgut der Pflanzen behandelt werden.

Beim Einsatz der erfindungsgemäßen Wirkstoffe als Fungizide können die Aufwandmengen je nach Applikationsart innerhalb eines größeren Bereiches variiert werden. Bei der Behandlung von Pflanzenteilen liegen die Aufwandmengen an Wirkstoff im allgemeinen zwischen 0,1 und 10.000 g/ha, vorzugsweise zwischen 10 und 1.000 g/ha. Bei der Saatgutbehandlung liegen die Aufwandmengen an Wirkstoff im allgemeinen zwischen 0,001 und 50 g pro Kilogramm Saatgut, vorzugsweise zwischen 0,01 und 10 g pro Kilogramm Saatgut. Bei der Behandlung des Bodens liegen die Aufwandmengen an Wirkstoff im allgemeinen zwischen 0,1 und 10.000 g/ha, vorzugsweise zwischen 1 und 5.000 g/ha.

Wie bereits oben erwähnt, können erfindungsgemäß alle Pflanzen und deren Teile behandelt werden. In einer bevorzugten Ausführungsform werden wild vorkommende oder durch konventionelle biologische Zuchtmethoden, wie Kreuzung oder Protoplastenfusion erhaltenen Pflanzenarten und Pflanzensorten sowie deren Teile behandelt. In einer weiteren bevorzugten Ausführungsform werden transgene Pflanzen und Pflanzensorten, die durch gentechnologische Methoden gegebenenfalls in Kombination mit konventionellen Methoden erhalten wurden (Genetically Modified Organisms) und deren Teile behandelt. Der Begriff "Teile" bzw. "Teile von Pflanzen" oder "Pflanzenteile" wurde oben erläutert.

10

Besonders bevorzugt werden erfindungsgemäß Pflanzen der jeweils handelsüblichen oder in Gebrauch befindlichen Pflanzensorten behandelt. Unter Pflanzensorten versteht man Pflanzen mit neuen Eigenschaften ("Traits"), die sowohl durch konventionelle Züchtung, durch Mutagenese oder durch rekombinante DNA-Techniken gezüchtet worden sind. Dies können Sorten, Rassen, Bio- und Genotypen sein.

15

Je nach Pflanzenarten bzw. Pflanzensorten, deren Standort und Wachstumsbedingungen (Böden, Klima, Vegetationsperiode, Ernährung) können durch die erfindungsgemäße Behandlung auch überadditive ("synergistische") Effekte auftreten. So sind beispielsweise erniedrigte Aufwandmengen und/oder Erweiterungen des Wirkungsspektrums und/oder eine Verstärkung der Wirkung der erfindungsgemäß verwendbaren Stoffe und Mittel, besseres Pflanzenwachstum, erhöhte Toleranz gegenüber hohen oder niedrigen Temperaturen, erhöhte Toleranz gegen Trockenheit oder gegen Wasser- bzw. Bodensalzgehalt, erhöhte Blühleistung, erleichterte Ernte, Beschleunigung der Reife, höhere Ernteerträge, höhere Qualität und/oder höherer Ernährungswert der Ernteprodukte, höhere Lagerfähigkeit und/oder Bearbeitbarkeit der Ernteprodukte möglich, die über die eigentlich zu erwartenden Effekte hinausgehen.

25

30

20

Zu den bevorzugten erfindungsgemäß zu behandelnden transgenen (gentechnologisch erhaltenen) Pflanzen bzw. Pflanzensorten gehören alle Pflanzen, die durch die gentechnologische Modifikation genetisches Material erhielten, welches diesen Pflanzen besondere vorteilhafte wertvolle Eigenschaften ("Traits") verleiht. Beispiele für

solche Eigenschaften sind besseres Pflanzenwachstum, erhöhte Toleranz gegenüber hohen oder niedrigen Temperaturen, erhöhte Toleranz gegen Trockenheit oder gegen Wasser- bzw. Bodensalzgehalt, erhöhte Blühleistung, erleichterte Ernte, Beschleunigung der Reife, höhere Ernteerträge, höhere Qualität und/oder höherer Ernährungswert der Ernteprodukte, höhere Lagerfähigkeit und/oder Bearbeitbarkeit der Ernteprodukte. Weitere und besonders hervorgehobene Beispiele für solche Eigenschaften sind eine erhöhte Abwehr der Pflanzen gegen tierische und mikrobielle Schädlinge, wie gegenüber Insekten, Milben, pflanzenpathogenen Pilzen, Bakterien und/oder Viren sowie eine erhöhte Toleranz der Pflanzen gegen bestimmte herbizide Wirkstoffe. Als Beispiele transgener Pflanzen werden die wichtigen Kulturpflanzen, wie Getreide (Weizen, Reis), Mais, Soja, Kartoffel, Baumwolle, Raps sowie Obstpflanzen (mit den Früchten Äpfel, Birnen, Zitrusfrüchten und Weintrauben) erwähnt, wobei Mais, Soja, Kartoffel, Baumwolle und Raps besonders hervorgehoben werden. Als Eigenschaften ("Traits") werden besonders hervorgehoben die erhöhte Abwehr der Pflanzen gegen Insekten durch in den Pflanzen entstehende Toxine, insbesondere solche, die durch das genetische Material aus Bacillus Thuringiensis (z.B. durch die Gene CryIA(a), CryIA(b), CryIA(c), CryIIA, CryIIIA, CryIIIB2, Cry9c Cry2Ab, Cry3Bb und CryIF sowie deren Kombinationen) in den Pflanzen erzeugt werden (im folgenden "Bt Pflanzen"). Als Eigenschaften ("Traits") werden auch besonders hervorgehoben die erhöhte Abwehr von Pflanzen gegen Pilze, Bakterien und Viren durch Systemische Akquirierte Resistenz (SAR), Systemin, Phytoalexine, Elicitoren sowie Resistenzgene und entsprechend exprimierte Proteine und Toxine. Als Eigenschaften ("Traits") werden weiterhin besonders hervorgehoben die erhöhte Toleranz der Pflanzen gegenüber bestimmten herbiziden Wirkstoffen, beispielsweise Imidazolinonen, Sulfonylharnstoffen, Glyphosate oder Phosphinotricin (z.B. "PAT"-Gen). Die jeweils die gewünschten Eigenschaften ("Traits") verleihenden Gene können auch in Kombinationen miteinander in den transgenen Pflanzen vorkommen. Als Beispiele für "Bt Pflanzen" seien Maissorten, Baumwollsorten, Sojasorten und Kartoffelsorten genannt, die unter den Handelsbezeichnungen YIELD GARD® (z.B. Mais, Baumwolle, Soja), KnockOut® (z.B. Mais), StarLink® (z.B. Mais), Bollgard® (Baumwolle), Nucoton® (Baumwolle) und NewLeaf® (Kartoffel) vertrieben werden. Als Beispiele für Herbizid tolerante Pflanzen seien Maissorten, Baumwollsorten und

)

20

15

25

Sojasorten genannt, die unter den Handelsbezeichnungen Roundup Ready® (Toleranz gegen Glyphosate z.B. Mais, Baumwolle, Soja), Liberty Link® (Toleranz gegen Phosphinotricin, z.B. Raps), IMI® (Toleranz gegen Imidazolinone) und STS® (Toleranz gegen Sulfonylharnstoffe z.B. Mais) vertrieben werden. Als Herbizid resistente (konventionell auf Herbizid-Toleranz gezüchtete) Pflanzen seien auch die unter der Bezeichnung Clearfield® vertriebenen Sorten (z.B. Mais) erwähnt. Selbstverständlich gelten diese Aussagen auch für in der Zukunft entwickelte bzw. zukünftig auf den Markt kommende Pflanzensorten mit diesen oder zukünftig entwickelten genetischen Eigenschaften ("Traits").

10

15 .

Die aufgeführten Pflanzen können besonders vorteilhaft erfindungsgemäß mit den Verbindungen der allgemeinen Formel (I) bzw. den erfindungsgemäßen Wirkstoffmischungen behandelt werden. Die bei den Wirkstoffen bzw. Mischungen oben angegebenen Vorzugsbereiche gelten auch für die Behandlung dieser Pflanzen. Besonders hervorgehoben sei die Pflanzenbehandlung mit den im vorliegenden Text speziell aufgeführten Verbindungen bzw. Mischungen.

Die Herstellung und die Verwendung der erfindungsgemäßen Wirkstoffe geht aus den folgenden Beispielen hervor.

15

20

#### <u>Herstellungsbeispiele</u>

#### Beispiel 1: Herstellung von 2-(1,3-Dimethylbutyl)phenylamin der Formel (III)

H<sub>2</sub>N H<sub>3</sub>C CH<sub>3</sub>

Ein Gemisch aus 62.8 g (0.67 mol) Anilin, 132.8 g (1.58 mol) 4-Methylpent-1-en, 1.82 g Aluminiumgranulat und 5.58 g (41.8 mmol) Aluminiumchlorid wird in einem Stahlautoklaven auf 255°C erhitzt. Das Reaktionsgemisch wird für 10 h bei Eigendruck und dieser Temperatur gehalten.

Zur Aufarbeitung wird nach Abkühlen und Entspannen der Autoklaveninhalt mit Toluol quantitativ in ein neues Gefäß überführt und bei 30-40°C für 15 min mit 80 ml 40%iger Natronlauge und 100 ml Wasser verrührt. Die organische Phase wird abgetrennt, mit Wasser gewaschen und über Kaliumcarbonat getrocknet. Nach Entfernen des Toluols am Rotationsverdampfer wird der Rückstand fraktioniert destilliert.

Man erhält 43.9 g (33 %) an 2-(1,3-Dimethylbutyl)phenylamin als farbloses Öl (Siedebereich 73-85°C, 0.3 mbar).

10

#### Beispiel 2: N-[2-(1,3-Dimethylbutyl)phenyl]-2-(trifluormethyl)benzamid

Zu einer Suspension von 4.15 g Kaliumcarbonat in 200 ml Acetonitril werden 5.32 g (30 mmol) 2-(1,3-Dimethylbutyl)phenylamin (Beispiel 1) und 6.26 g (30 mmol) (2-(Trifluormethyl)benzoylchlorid getropft. Das Reaktionsgemisch wird 10 h gerührt.

Zur Aufarbeitung wird die Reaktionslösung mit 200 ml Wasser versetzt und das Gemisch mit Ethylacetat extrahiert. Die organischen Phasen werden mit Natriumsulfat getrocknet und eingeengt. Der Rückstand wird an Kieselgel (Gradient Cyclohexan 100 % bis Cyclohexan/Ethylacetat 1:4) chromatographiert.

Man erhält 5.00 g (46%) an N-[2-(1,3-Dimethylbutyl)phenyl]-2-(trifluormethyl)benzamid mit dem logP (pH 2.3) = 4.09.

15

#### Beispiel 3: N-[2-(1,3-Dimethylbutyl)phenyl]-2-iodbenzamid

Zu einer Suspension von 2.76 g Kaliumcarbonat in 100 ml Acetonitril werden 3.55 g (20 mmol) 2-(1,3-Dimethylbutyl)phenylamin (Beispiel 1) und 5.33 g (20 mmol) 2-Iodbenzoylchlorid getropft. Das Reaktionsgemisch wird 10 h gerührt.

Zur Aufarbeitung wird die Reaktionslösung mit 100 ml Wasser versetzt und das Gemisch mit Ethylacetat extrahiert. Die organischen Phasen werden mit Natriumsulfat getrocknet und eingeengt. Der Rückstand wird an Kieselgel (Gradient Cyclohexan 100 % bis Cyclohexan/Ethylacetat 1:4) chromatographiert.

Man erhält 7.00 g (83 %) an N-[2-(1,3-Dimethylbutyl)phenyl]-2-iodbenzamid mit dem logP (pH 2.3) = 4.12.

Analog den oben genannten Beispielen werden ausgehend von Anilin und 4-Methylpent-1-en sowie 2-Chlorbenzoylchlorid bzw. 2-Brombenzoylchlorid die folgenden Verbindungen erhalten:

Beispiel 4:

N-[2-(1,3-Dimethylbutyl)phenyl]-2-chlorbenzamid

 $[\log P (pH 2.3) = 3.98]$ 

Beispiel 5:

N-[2-(1,3-Dimethylbutyl)phenyl]-2-brombenzamid

 $[\log P (pH 2.3) = 4.01]$ 

10

Analog den oben genannten Beispielen werden außerdem ausgehend von Anilin und 4,4-Dimethyl-1-penten sowie 2-(Trifluormethyl)benzoylchlorid, 2-Chlorbenzoylchlorid, 2-Brombenzoylchlorid bzw. 2-Iodbenzoylchlorid die folgenden Verbindungen erhalten:

15

Beispiel 6:

2-(Trifluormethyl)-N-[2-(1,3,3-trimethylbutyl)phenyl]benzamid

 $[\log P (pH 2.3) = 4.36]$ 

Beispiel 7:

2-Chlor-N-[2-(1,3,3-trimethylbutyl)phenyl]benzamid

Beispiel 8:

2-Brom-N-[2-(1,3,3-trimethylbutyl)phenyl]benzamid

Beispiel 9:

2-Iod-N-[2-(1,3,3-trimethylbutyl)phenyl]benzamid

20

[logP (pH 2.3) = 4.40]

Die Bestimmung der in den Herstellungsbeispielen angegebenen logP-Werte erfolgte gemäß EEC-Directive 79/831 Annex V.A8 durch HPLC (High Performance Liquid Chromatography) an einer Phasenumkehrsäule (C 18). Temperatur: 43°C.

25

Eluenten für die Bestimmung im sauren Bereich: 0,1 % wässrige Phosphorsäure, Acetonitril; linearer Gradient von 10 % Acetonitril bis 90 % Acetonitril.

30

Die Eichung erfolgte mit unverzweigten Alkan-2-onen (mit 3 bis 16 Kohlenstoffatomen), deren logP-Werte bekannt sind (Bestimmung der logP-Werte anhand der Retentionszeiten durch lineare Interpolation zwischen zwei aufeinanderfolgenden Alkanonen).

#### Anwendungsbeispiele

#### Beispiel A

# Sphaerotheca-Test (Gurke) / protektiv

Lösungsmittel:

24,5 Gewichtsteile Aceton

24,5 Gewichtsteile Dimethylacetamid

Emulgator:

1 Gewichtsteil Alkylarylpolyglykolether

10

5

Zur Herstellung einer zweckmäßigen Wirkstoffzubereitung vermischt man 1 Gewichtsteil Wirkstoff mit den angegebenen Mengen Lösungsmittel und Emulgator und verdünnt das Konzentrat mit Wasser auf die gewünschte Konzentration.

.15

Zur Prüfung auf protektive Wirksamkeit werden junge Pflanzen mit der Wirkstoffzubereitung in der angegebenen Aufwandmenge besprüht. Nach Antrocknen des Sprühbelages werden die Pflanzen mit einer wässrigen Sporensuspension von *Sphaerotheca fuliginea* inokuliert. Die Pflanzen werden dann bei ca. 23°C und einer relativen Luftfeuchtigkeit von ca. 70 % im Gewächshaus aufgestellt.

20

7 Tage nach der Inokulation erfolgt die Auswertung. Dabei bedeutet 0 % ein Wirkungsgrad, der demjenigen der Kontrolle entspricht, während ein Wirkungsgrad von 100 % bedeutet, dass kein Befall beobachtet wird.

25

Wirkstoffe, Aufwandmengen und Versuchsergebnisse gehen aus der folgenden Tabelle hervor.

Tabelle A
Sphaerotheca-Test (Gurke) / protektiv

Wirkstoff	Aufwandmenge an Wirkstoff in g/ha	Wirkungsgrad in %
CF <sub>3</sub> O N H <sub>3</sub> C CH <sub>3</sub>	100	100
H <sub>3</sub> C CH <sub>3</sub>	100	100

#### Beispiel B

#### Venturia - Test (Apfel) / protektiv

Lösungsmittel:

24,5 Gewichtsteile Aceton

24,5 Gewichtsteile Dimethylacetamid

Emulgator:

1,0 Gewichtsteile Alkyl-Aryl-Polyglykolether

Zur Herstellung einer zweckmäßigen Wirkstoffzubereitung vermischt man 1 Gewichtsteil Wirkstoff mit den angegebenen Mengen Lösungsmittel und Emulgator und verdünnt das Konzentrat mit Wasser auf die gewünschte Konzentration.

Zur Prüfung auf protektive Wirksamkeit werden junge Pflanzen mit der Wirkstoffzubereitung in der angegebenen Aufwandmenge besprüht. Nach Antrocknen des Spritzbelages werden die Pflanzen mit einer wässrigen Konidiensuspension des Apfelschorferregers *Venturia inaequalis* inokuliert und verbleiben dann 1 Tag bei ca. 20°C und 100 % relativer Luftfeuchtigkeit in einer Inkubationskabine.

Die Pflanzen werden dann im Gewächshaus bei ca. 21°C und einer relativen Luftfeuchtigkeit von ca. 90 % aufgestellt.

10 Tage nach der Inokulation erfolgt die Auswertung. Dabei bedeutet 0 % ein Wirkungsgrad, der demjenigen der Kontrolle entspricht, während ein Wirkungsgrad von 100 % bedeutet, dass kein Befall beobachtet wird.

Wirkstoffe, Aufwandmengen und Versuchsergebnisse gehen aus der folgenden Tabelle hervor.

20

25

15

Tabelle B
Venturia - Test (Apfel) / protektiv

Wirkstoff	Aufwandmenge an Wirkstoff in g/ha	Wirkungsgrad in %
CF <sub>3</sub> O N H <sub>3</sub> C CH <sub>3</sub>	100	100
H <sub>3</sub> C CH <sub>3</sub>	100	100

#### Beispiel C

# Botrytis-Test (Bohne) / protektiv

Lösungsmittel:

49 Gewichtsteile N,N-Dimethylformamid

Emulgator:

1 Gewichtsteil Alkylarylpolyglykolether

Zur Herstellung einer zweckmäßigen Wirkstoffzubereitung vermischt man 1 Gewichtsteil Wirkstoff mit den angegebenen Mengen Lösungsmittel und Emulgator und verdünnt das Konzentrat mit Wasser auf die gewünschte Konzentration.

Zur Prüfung auf protektive Wirksamkeit werden junge Pflanzen mit der Wirkstoffzubereitung in der angegebenen Aufwandmenge besprüht. Nach Antrocknen des Spritzbelages werden auf jedes Blatt 2 kleine mit *Botrytis cinerea* bewachsene Agarstückchen aufgelegt. Die inokulierten Pflanzen werden in einer abgedunkelten Kammer bei ca. 20°C und 100 % relativer Luftfeuchtigkeit aufgestellt.

2 Tage nach der Inokulation wird die Größe der Befallsflecken auf den Blättern ausgewertet. Dabei bedeutet 0 % ein Wirkungsgrad, der demjenigen der Kontrolle entspricht, während ein Wirkungsgrad von 100 % bedeutet, dass kein Befall beobachtet wird.

Wirkstoffe, Aufwandmengen und Versuchsergebnisse gehen aus der folgenden Tabelle hervor.

15

20.

10

- 5

Tabelle C
Botrytis-Test (Bohne) / protektiv

Wirkstoff	Aufwandmenge an Wirkstoff in g/ha	Wirkungsgrad in %
CF <sub>3</sub> O N H <sub>3</sub> C CH <sub>3</sub>	500	93
H <sub>3</sub> C CH <sub>3</sub>	500	93

#### Beispiel D

#### Alternaria-Test (Tomate) / protektiv

Lösungsmittel:

49 Gewichtsteile N,N-Dimethylformamid

Emulgator:

1 Gewichtsteil Alkylarylpolyglykolether

Zur Herstellung einer zweckmäßigen Wirkstoffzubereitung vermischt man 1 Gewichtsteil Wirkstoff mit den angegebenen Mengen Lösungsmittel und Emulgator und verdünnt das Konzentrat mit Wasser auf die gewünschte Konzentration.

Zur Prüfung auf protektive Wirksamkeit bespritzt man junge Tomatenpflanzen mit der Wirkstoffzubereitung in der angegebenen Aufwandmenge. 1 Tag nach der Behandlung werden die Pflanzen mit einer wässrigen Sporensuspension von *Alternaria solani* inokuliert und stehen dann 24 Stunden bei 100 % relativer Feuchte. Anschließend stehen die Pflanzen bei ca. 96 % relativer Luftfeuchtigkeit und einer Temperatur von 20°C.

7 Tage nach der Inokulation erfolgt die Auswertung. Dabei bedeutet 0 % ein Wirkungsgrad, der demjenigen der Kontrolle entspricht, während ein Wirkungsgrad von 100 % bedeutet, dass kein Befall beobachtet wird.

Wirkstoffe, Aufwandmengen und Versuchsergebnisse gehen aus der folgenden Tabelle hervor.

15

10.

Tabelle D
Alternaria-Test (Tomate) / protektiv

Wirkstoff	Aufwandmenge an Wirkstoff in g/ha	Wirkungsgrad in %
CF <sub>3</sub> O N H <sub>3</sub> C CH <sub>3</sub>	750	100
H <sub>3</sub> C CH <sub>3</sub>	750	100

#### Beispiel E

#### Erysiphe-Test (Gerste) / protektiv

Lösungsmittel:

49 Gewichtsteile N,N-Dimethylformamid

Emulgator:

1 Gewichtsteil Alkylarylpolyglykolether

Zur Herstellung einer zweckmäßigen Wirkstoffzubereitung vermischt man 1 Gewichtsteil Wirkstoff mit den angegebenen Mengen Lösungsmittel und Emulgator und verdünnt das Konzentrat mit Wasser auf die gewünschte Konzentration.

Zur Prüfung auf protektive Wirksamkeit bespritzt man junge Getreidepflanzen mit der Wirkstoffzubereitung in der angegebenen Aufwandmenge. 1 Tag nach der Behandlung werden die Pflanzen mit Sporen von Erysiphe graminis f. sp. hordei inokuliert. Anschließend werden die Pflanzen in einem Gewächshaus bei 70 % relativer Luftfeuchtigkeit und einer Temperatur von 18°C aufgestellt.

7 Tage nach der Inokulation erfolgt die Auswertung. Dabei bedeutet 0 % ein Wirkungsgrad, der demjenigen der Kontrolle entspricht, während ein Wirkungsgrad von 100 % bedeutet, dass kein Befall beobachtet wird.

Wirkstoffe, Aufwandmengen und Versuchsergebnisse gehen aus der folgenden Tabelle hervor.

20

10

15 -

Tabelle E Erysiphe-Test (Gerste) / protektiv

Wirkstoff	Aufwandmenge an Wirkstoff in g/ha	Wirkungsgrad in %
CF <sub>3</sub> O H <sub>3</sub> C CH <sub>3</sub>	500	95
H <sub>3</sub> C CH <sub>3</sub>	500	95



#### Puccinia-Test (Weizen) / protektiv

Lösungsmittel:

25 Gewichtsteile N,N-Dimethylacetamid

Emulgator:

0,6 Gewichtsteile Alkylarylpolyglykolether

Zur Herstellung einer zweckmäßigen Wirkstoffzubereitung vermischt man 1 Gewichtsteil Wirkstoff mit den angegebenen Mengen Lösungsmittel und Emulgator und verdünnt das Konzentrat mit Wasser auf die gewünschte Konzentration.

Zur Prüfung auf protektive Wirksamkeit werden junge Pflanzen mit einer Sporensuspension von *Puccinia recondita* in einer 0,1%igen wässrigen Agarlösung inokuliert. Nach Antrocknen des Spritzbelages werden die Pflanzen mit der Wirkstoffzubereitung in der angegebenen Aufwandmenge besprüht. Die Pflanzen verbleiben 24 Stunden bei 20°C und 100 % relativer Luftfeuchtigkeit in einer Inkubationskabine.

Die Pflanzen werden dann in einem Gewächshaus bei einer Temperatur von ca. 20°C und eine relativen Luftfeuchtigkeit von 80 % aufgestellt, um die Entwicklung von Rostpusteln zu begünstigen.

10 Tage nach der Inokulation erfolgt die Auswertung. Dabei bedeutet 0 % ein Wirkungsgrad, der demjenigen der Kontrolle entspricht, während ein Wirkungsgrad von 100 % bedeutet, dass kein Befall beobachtet wird.

Wirkstoffe, Aufwandmengen und Versuchsergebnisse gehen aus der folgenden Tabelle hervor.

10

15

20

Tabelle F
Puccinia-Test (Weizen) / protektiv

Wirkstoff	Aufwandmenge an Wirkstoff in g/ha	Wirkungsgrad in %
CF <sub>3</sub> O N H <sub>3</sub> C CH <sub>3</sub>	500	100
H <sub>3</sub> C CH <sub>3</sub>	500	100

#### Patentansprüche

1. Phenylbenzamide der Formel (I)

in welcher

20

25

R<sup>1</sup> für Trifluormethyl, Chlor, Brom oder Iod steht und

R<sup>2</sup> für Wasserstoff oder Methyl steht.

- 2. Phenylbenzamide der Formel (I) gemäß Anspruch 1, in welcher R<sup>2</sup> für Wasserstoff steht.
  - 3. Phenylbenzamide der Formel (I) gemäß Anspruch 1, ausgewählt aus

N-[2-(1,3-Dimethylbutyl)phenyl]-2-(trifluormethyl)benzamid,

N-[2-(1,3-Dimethylbutyl)phenyl]-2-chlorbenzamid,

N-[2-(1,3-Dimethylbutyl)phenyl]-2-brombenzamid,

N-[2-(1,3-Dimethylbutyl)phenyl]-2-iodbenzamid,

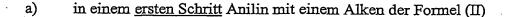
2-(Trifluormethyl)-N-[2-(1,3,3-trimethylbutyl)phenyl]benzamid,

2-Chlor-N-[2-(1,3,3-trimethylbutyl)phenyl]benzamid,

2-Brom-N-[2-(1,3,3-trimethylbutyl)phenyl]benzamid und

2-Iod-N-[2-(1,3,3-trimethylbutyl)phenyl]benzamid.

4. Verfahren zum Herstellen von Phenylbenzamiden der Formel (I) gemäß Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass man



$$H_2C$$
 $R^2$ 
 $CH_3$ 
(II)

in welcher

R<sup>2</sup> für Wasserstoff oder Methyl steht,

in Gegenwart einer Base und in Gegenwart einer Lewis-Säure umsetzt und das so erhaltene Alkylphenylamin-Derivat der Formel (III)

$$H_2N$$
 $H_3C$ 
 $R^2$ 
 $CH_3$ 
 $CH_3$ 

in welcher

10

20

R<sup>2</sup> für Wasserstoff oder Methyl steht,

b) in einem zweiten Schritt mit einem Benzoylchlorid der Formel (IV)

in welcher

R<sup>1</sup> für Trifluormethyl, Chlor, Brom oder Iod steht,

gegebenenfalls in Gegenwart eines Säurebindemittels und gegebenenfalls in Gegenwart eines Verdünnungsmittels umsetzt.

- 5. Mittel zur Bekämpfung unerwünschter Mikroorganismen, gekennzeichnet durch einen Gehalt an mindestens einem Phenylbenzamid der Formel (I) gemäß Anspruch 1 neben Streckmitteln und/oder oberflächenaktiven Stoffen.
- 6. Verwendung von Phenylbenzamiden der Formel (I) gemäß Anspruch 1 zur Bekämpfung unerwünschter Mikroorganismen.
- 7. Verfahren zur Bekämpfung unerwünschter Mikroorganismen, dadurch gekennzeichnet, dass man Phenylbenzamide der Formel (I) gemäß Anspruch 1 auf die Mikroorganismen und/oder deren Lebensraum ausbringt.
- 8. Verfahren zur Herstellung von Mitteln zur Bekämpfung unerwünschter Mikroorganismen, dadurch gekennzeichnet, dass man Phenylbenzamide der Formel (I) gemäß Anspruch 1 mit Streckmitteln und/oder oberflächenaktiven Stoffen vermischt.
- 9. Alkylphenylamin-Derivat der Formel (III)

$$H_2N$$
 $H_3C$ 
 $R^2$ 
 $CH_3$ 
 $CH_3$ 

in welcher

10

15

25

R<sup>2</sup> für Wasserstoff oder Methyl steht.

10. Verfahren zum Herstellen von Phenylamin-Derivaten der Formel (III) gemäß Anspruch 9, dadurch gekennzeichnet, dass man

Anilin mit einem Alken der Formel (II)

$$H_2C$$
 $R^2$ 
 $CH_3$ 
 $CH_3$ 

in welcher

R<sup>2</sup> für Wasserstoff oder Methyl steht,

in Gegenwart einer Base und in Gegenwart einer Lewis-Säure umsetzt.

# **Phenylbenzamide**

# Zusammenfassung

Neue Phenylbenzamide der Formel (I)

$$\mathbb{R}^1$$
  $\mathbb{N}$   $\mathbb{R}^2$   $\mathbb{C}\mathbb{H}_3$   $\mathbb{C}$ 

in welcher

R<sup>1</sup> für Trifluormethyl, Chlor, Brom oder Iod steht und

R<sup>2</sup> für Wasserstoff oder Methyl steht,

ein Verfahren zur Herstellung dieser Stoffe und deren Verwendung zur Bekämpfung unerwünschter Mikroorganismen, sowie neue Zwischenprodukte und deren Herstellung.

# This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning Operations and is not part of the Official Record

# BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

□ BLACK BORDERS
□ IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
□ FADED TEXT OR DRAWING
□ BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING
□ SKEWED/SLANTED IMAGES
□ COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS
□ GRAY SCALE DOCUMENTS
□ LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT
□ REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY

# IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.

OTHER: